

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problems Mailbox.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

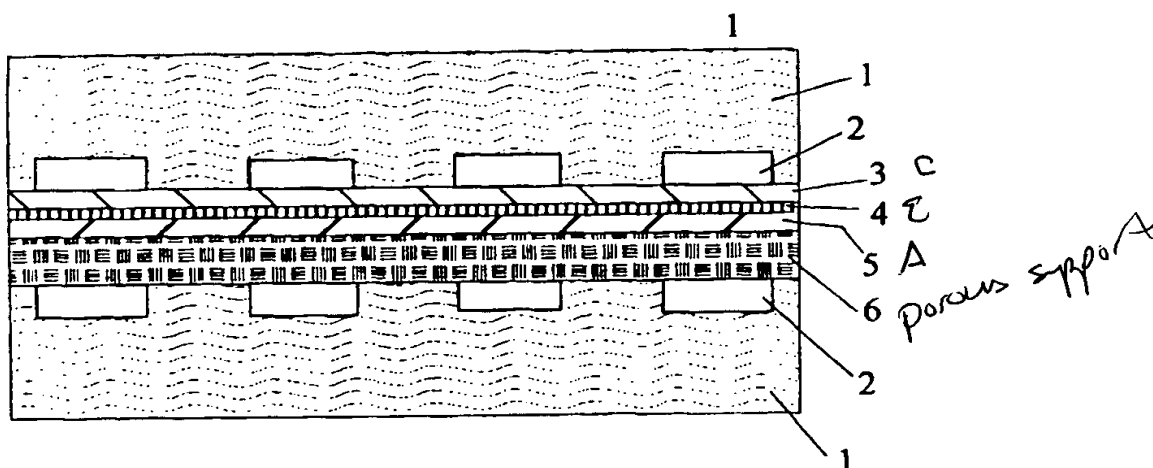


**PCT**  
WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales Büro  
INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

<p>(51) Internationale Patentklassifikation <sup>6</sup> : <b>H01M</b></p>	<b>A2</b>	<p>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: <b>WO 97/23007</b></p> <p>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 26. Juni 1997 (26.06.97)</p>
<p>(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE96/02424</p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: 13. December 1996 (13.12.96)</p> <p>(30) Prioritätsdaten: 195 47 700.6 20. December 1995 (20.12.95) DE</p> <p>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH [DE/DE]; Wilhelm-Johnen-Strasse, D-52425 Jülich (DE).</p> <p>(72) Erfinder; und</p> <p>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): NAOUMIDIS, Aristides [GR/DE]; Kreisbahnstrasse 30, D-52428 Jülich (DE). TIETZ, Frank [DE/DE]; Dr.-Weyer-Strasse 18, D-52428 Jülich (DE). STÖVER, Detlev [DE/DE]; Taubenforst 9, D-52382 Niederzier (DE).</p> <p>(74) Gemeinsamer Vertreter: FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH; Rechts- und Patentabteilung, D-52425 Jülich (DE).</p>		<p>(81) Bestimmungsstaaten: AU, CA, JP, KR, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).</p> <p><b>Veröffentlicht</b> <i>Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.</i></p>

(54) Title: ELECTRODE SUBSTRATE FOR FUEL CELL

(54) Bezeichnung: ELEKTRODENSUBSTRAT FÜR BRENNSTOFFZELLE



(57) Abstract

The invention relates to an electrode for a fuel cell with two layers (5, 6). The one layer (6) of said electrode is self-supporting and the other layer (5) has catalytic properties and of the self-supporting layer (6) is several times thicker than the other layer (5) with catalytic properties. The self-supporting layer can be manufactured from economical materials such as Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Consequently, the financial savings compared with known electrodes for fuel cells can be considerable.

### (57) Zusammenfassung

Die Erfindung bezieht sich auf eine Elektrode für eine Brennstoffzelle mit zwei Schichten (5, 6), bei der die eine Schicht (6) selbsttragend ist und die andere Schicht (5) katalytische Eigenschaften aufweist und bei der die Schichtdicke der selbsttragenden Schicht (6) mehrfach dicker als die andere Schicht mit den katalytischen Eigenschaften (5) ist. Die selbsttragende Schicht kann aus preiswerten Materialien wie  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  hergestellt werden. Daher lassen sich erfindungsgemäß erhebliche Kosten im Vergleich zu bekannten Elektroden für Brennstoffzellen einsparen.

### LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AM	Armenien	GB	Vereinigtes Königreich	MX	Mexiko
AT	Österreich	GE	Georgien	NE	Niger
AU	Australien	GN	Guinea	NL	Niederlande
BB	Barbados	GR	Griechenland	NO	Norwegen
BE	Belgien	HU	Ungarn	NZ	Neuseeland
BF	Burkina Faso	IE	Irland	PL	Polen
BG	Bulgarien	IT	Italien	PT	Portugal
BJ	Benin	JP	Japan	RO	Rumänien
BR	Brasilien	KE	Kenya	RU	Russische Föderation
BY	Belarus	KG	Kirgisistan	SD	Sudan
CA	Kanada	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	SE	Schweden
CF	Zentrale Afrikanische Republik	KR	Republik Korea	SG	Singapur
CG	Kongo	KZ	Kasachstan	SI	Slowenien
CH	Schweiz	LI	Liechtenstein	SK	Slowakei
CI	Côte d'Ivoire	LK	Sri Lanka	SN	Senegal
CM	Kamerun	LR	Liberia	SZ	Swasiland
CN	China	LT	Litauen	TD	Tschad
CS	Tschechoslowakei	LU	Luxemburg	TG	Togo
CZ	Tschechische Republik	LV	Lettland	TJ	Tadschikistan
DE	Deutschland	MC	Monaco	TT	Trinidad und Tobago
DK	Dänemark	MD	Republik Moldau	UA	Ukraine
EE	Estland	MG	Madagaskar	UG	Uganda
ES	Spanien	ML	Mali	US	Vereinigte Staaten von Amerika
FI	Finnland	MN	Mongolei	UZ	Usbekistan
FR	Frankreich	MR	Mauretanien	VN	Vietnam
GA	Gabon	MW	Malawi		

## B e s c h r e i b u n g

Elektrodensubstrat für Brennstoffzelle

---

Die Erfindung bezieht sich auf eine Elektrode sowie auf einen Brennstoffzellenstapel für eine Brennstoffzelle.

5 Eine Hochtemperatur-Brennstoffzelle (SOFC) besteht aus einem Brennstoffzellenstapel und der zugehörigen Peripherie. Ein Brennstoffzellenstapel weist mehrere Einheiten, bestehend aus Elektrolyt, Kathode und Anode, auf. Der Elektrolyt ist z. B. aus Yttrium stabilisiertem Zirkoniumdioxid (YSZ) ( $\text{ZrO}_2 - 8 \text{ mol\% } \text{Y}_2\text{O}_3$ ), die Kathode z. B. aus Strontium dotiertes Lanthanmanganoxid (LSM) ( $\text{La}_{1-x-y}\text{Sr}_x\text{MnO}_{3-z}$ ) und die Anode z. B. aus einer nicht  
10 katalytisch wirkenden sowie einer katalytisch wirkenden Phase (z.B. Nickel-YSZ Cermet; 40 Vol-% Ni / 60 Vol-% YSZ) hergestellt. Interkonnektorplatten verbinden mehrere Anode-Elektrolyt-Kathode-Einheiten miteinander.

15 Es ist aus der deutschen Patentanmeldung, amtliches Aktenzeichen 195 19 847.6-45 bekannt, selbsttragende Elektrolytfolien und Interkonnektorplatten einzusetzen. Unter selbsttragender Eigenschaft ist zu verstehen, daß die Folien nicht durchbiegen, wenn sie an einer Stelle  
20 angehoben werden. Die beiden Elektroden werden auf der Elektrolytfolie als Schichten aufgetragen. Sowohl die

Elektrolytfolie, als auch die Interkonnektorplatte müssen die mechanische Stabilität gewährleisten.

Eine Dicke von ca. 200-300  $\mu\text{m}$  der selbsttragenden Elektrolytfolie ist notwendig, um die mechanische Stabilität zu gewährleisten. Eine dicke Elektrolytschicht hemmt jedoch nachteilhaft den in der Brennstoffzellen stattfindenden Ionentransport durch den Elektrolyten.

Um diesen Mangel zu beheben, ist das Substratkonzept entwickelt worden. Ein poröses Substrat wird aus einem der beiden Elektrodenmaterialien hergestellt und übernimmt die tragende Funktion. Es muß dementsprechend dick angefertigt werden. Hierfür sind Schichtdicken größer als 0,5 mm erforderlich, weil die poröse Schicht eine viel geringere Festigkeit als beispielsweise der Elektrolyt besitzt.

Auf dieses Substrat wird eine sehr dünne Elektrolytschicht und hierauf die zweite Elektrodenschicht aufgebracht. Diese Dreischicht-Zelleinheiten werden zusammen mit den Interkonnektorplatten in Serie zu einem Stack geschaltet.

Nachteilhaft an beiden vorgenannten Konzepten ist, daß für die Herstellung der selbsttragenden Komponente teure Materialien wie YSZ, Cer-Verbindungen oder Lanthan-Verbindungen verwendet werden müssen.

Aufgabe der Erfindung ist die Schaffung einer Elektrode sowie eines Brennstoffzellenstapels, mittels derer die vorgenannten Nachteile vermindert werden können.

Gelöst wird die Aufgabe durch eine Elektrode sowie durch einen Brennstoffzellenstapel mit den Merkmalen des Haupt- bzw. Nebenanspruchs. Vorteilhafte Ausgestaltungen ergeben sich aus den Unteransprüchen.

5 Die Elektrode weist zwei Schichten auf.

Die eine Schicht verleiht der Elektrode die selbsttragende Eigenschaft. Dieser Zweck kann durch eine entsprechend dicke Schicht von z. B. 1 bis 3 mm erreicht werden. Bei Verwendung eines entsprechend stabilen Materials kann diese jedoch auch erheblich dünner als  
10 1 mm sein. Die Schichtdicke der selbsttragenden Schicht ist mehrfach dicker als die andere.

Die selbsttragende Schicht ist vorteilhaft mechanisch stabiler als die übrigen Elektrodenschichten oder die  
15 Elektrolytschicht. Insbesondere auf diese Weise kann teures Material eingespart werden.

Die andere Schicht weist die erforderlichen katalytischen Eigenschaften einer Elektrode in einer Brennstoffzelle auf. Katalysiert wird beispielsweise die Reformierungsreaktion bei interner Reformierung mittels  
20 Anode oder die Oxidation des Brennstoffes.

Die tragende Funktion von der katalytischen Funktion einer Elektrode zu trennen, ermöglicht die Verwendung billiger Materialien zur Erzielung der mechanischen  
25 Stabilität. Bei den bisherigen Konzepten mußten - wie erläutert - hierfür zwingend teure Materialien verwendet werden.

Alternative, preisgünstige Materialien für die selbsttragende Komponente sollten ferner folgende Kriterien für ihren Einsatz erfüllen:

- 5       - keine chemische Wechselwirkung mit dem Interkonnectormaterial und der katalytisch aktiven Anodenschicht,
- chemische Stabilität in Brenngasen verschiedener Zusammensetzung (z. B.  $\text{CH}_4/\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{C}_n\text{H}_m/\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{H}_2/\text{H}_2\text{O}$ ),
- 10      - Kompatibilität mit den thermophysikalischen Eigenschaften (z. B. thermischer Ausdehnungskoeffizient) der anderen Brennstoffzellen-Komponenten,
- elektrische Leitfähigkeit zur Überbrückung des Elektronentransports zwischen katalytisch aktiver Anodenschicht und Interkonnektor.

15       Besonders gut können Cermets bestehend aus Ni und  $\text{Al}_2\text{O}_3$  bzw. Ni und  $\text{TiO}_2$  diese Kriterien erfüllen. Geeignete handelsübliche, billige Oxide sind ferner:  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , abgereichertes  $\text{UO}_2$ .

20       Die chemischen Eigenschaften von  $\text{Al}_2\text{O}_3$  und  $\text{TiO}_2$  gewährleisten eine ausreichende Langzeitstabilität. Wechselwirkungen mit dem YSZ der katalytisch aktiven Schicht sind nicht bekannt ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) oder nicht schädlich ( $\text{TiO}_2$ ). Die thermischen Ausdehnungskoeffizienten von  $\text{Al}_2\text{O}_3$  und  $\text{TiO}_2$  ( $8,3 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  bzw.  $9,1 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ ) sowie die sich

25       intermediär bildenden Verbindungen  $\text{NiAl}_2\text{O}_4$  oder  $\text{NiTiO}_3$  ( $8,1 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  bzw.  $10,3 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ ) sind kleiner als die von YSZ ( $10,5 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ ) oder einem metallischen Interkonnektor ( $\text{CrFe}_5\text{Y}_2\text{O}_{11}$ :  $11,3 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ ). Durch



geeignete Zumischungen von Ni kann der thermische Ausdehnungskoeffizient den anderen Brennstoffzellen-Komponenten angeglichen werden. Z. B. beträgt der thermische Ausdehnungskoeffizient für

5  $\text{Al}_2\text{O}_3 + 67,8 \text{ Vol.-% NiO: } 10,49 * 10^{-6} \text{K}^{-1}$

$\text{Al}_2\text{O}_3 + 60 \text{ Vol.-% Ni: } 10,06 * 10^{-6} \text{K}^{-1}$

$\text{TiO}_2 + 59,3 \text{ Vol.-% NiO: } 11,37 * 10^{-6} \text{K}^{-1}$

$\text{TiO}_2 + 50 \text{ VOL.-% Ni: } 12,04 * 10^{-6} \text{K}^{-1}$

10 Durch die erhöhte Zumischung von NiO und Reduktion zu Ni wird außerdem eine gute elektrische Leitfähigkeit erzielt.

Durch die Verlagerung von Gaskanälen in die mechanisch stabilisierende Elektrodenschicht kann das Gas vorteilhaft auf kürzerem Wege im Vergleich zum bisherigen Substratkonzept der katalytisch aktiven Schicht zugeführt werden.

15

Es zeigen

Fig. 1: Brennstoffzelleneinheit mit Elektrode

20

Fig. 2: Brennstoffzelleneinheit mit Gaskanälen in der Elektrode

Figur 1 zeigt eine aus Interkonnektoren 1, Gaskanälen 2, Kathode 3, Elektrolyt 4, Anode 5 und 6 bestehende Einheit, die für einen Einsatz in Hochtemperatur-Brennstoffzellen vorgesehen ist.

25

Wie in Figur 1 und 2 dargestellt, wird bei der hier vorgestellten Anode die tragende von der katalytischen

Funktion örtlich getrennt. Die Herstellung der tragenden sowie der katalytisch aktiven Schicht erfolgt durch gängige Verfahren: ein Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>- oder ein Ni/TiO<sub>2</sub>-Cermet 6 wird durch Foliengießen und ggf. Laminieren von mehreren gegossenen Folien oder durch das Coat-Mix-Verfahren, die katalytisch aktive Schicht 5 durch Siebdruck oder Naßpulverspritzen hergestellt.

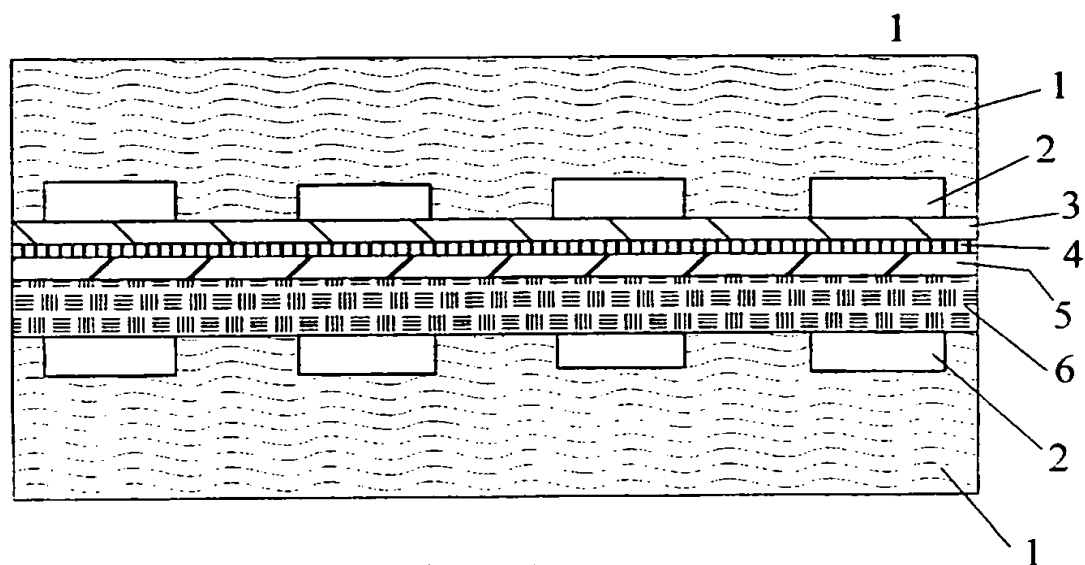
Durch Verlagerung der Gaskanäle 2 von Interkonnektor 1 (Figur 1) in das Innere der tragenden Schicht 6 (Figur 2) erreicht deutlich mehr Brenngas die katalytisch aktive Anodenschicht 5 und führt zu einer Erhöhung des Brenngas-Umsatzes. Die Gaskanäle 2 können beim Herstellen der tragenden Schicht 6 durch Verwendung von beispielsweise Kohlefasern oder vorgefertigten Hartpolymer-Matrizen hergestellt werden. Sowohl beim Coat-Mix-Verfahren als auch beim Foliengießen lassen sich diese ausgedehnten organischen Additive, bestehend aus C, H, O und evtl. N in den Grünkörper einfügen. In einem Verkokungsprozeß wird der Körper vorgesintert, um Formstabilität zu erhalten und anschließend an Luft endgesintert, wobei die organischen Additive verbrennen und eine Kanalstruktur im porösen Substrat zurücklassen.

Da auf diese Weise planparallele Brennstoffzellen-Komponenten zusammengefügt werden, wird nicht nur das Zusammenfügen von Anode und Interkonnektor erleichtert, sondern es wird auch in größerem Umfang teures Interkonnektormaterial gespart.

# P a t e n t a n s p r ü c h e

---

1. Elektrode für eine Brennstoffzelle mit zwei Schichten (5, 6), bei der die eine Schicht (5) selbsttragend ist und die andere Schicht (6) katalytische Eigenschaften aufweist und bei der die Schichtdicke der selbsttragenden Schicht (6) mehrfach dicker als die andere Schicht mit den katalytischen Eigenschaften (5) ist.
2. Elektrode nach vorhergehendem Anspruch, bei der die selbsttragende Schicht porös ist.
3. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche mit einer selbsttragenden Schicht, die aus Metalloxiden wie  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  oder  $\text{UO}_2$  besteht.
4. Elektrode nach vorhergehendem Anspruch mit den Metalloxiden zugemischtem Nickel.
5. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche mit in der dickeren Schicht (6) befindlichen Gaskanälen (2) für die Zuführung von Gas zur katalytisch aktiven Schicht.
6. Brennstoffzellenstapel mit einer Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche.



Figur 1

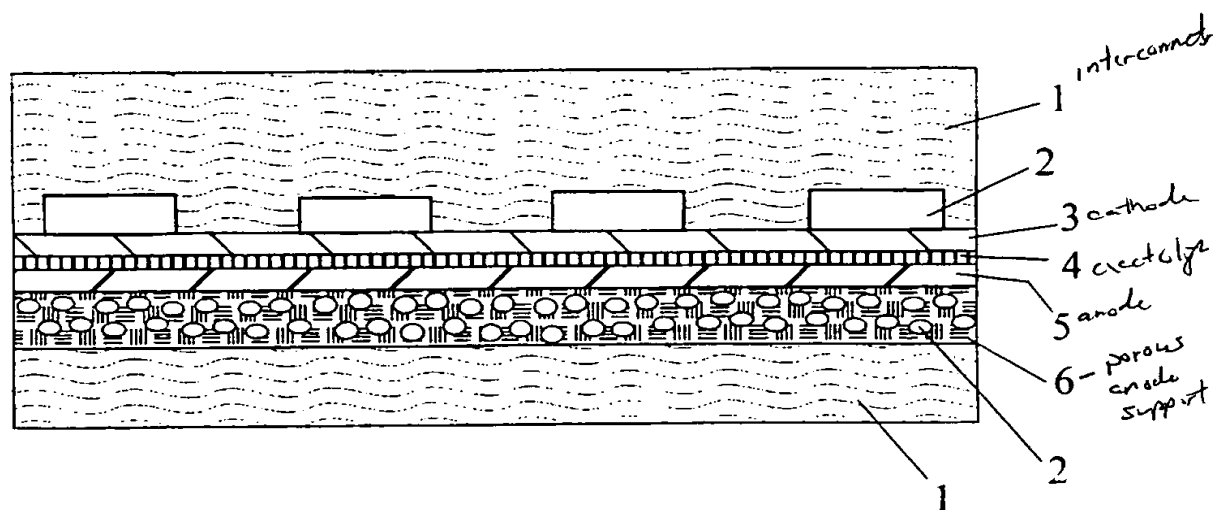
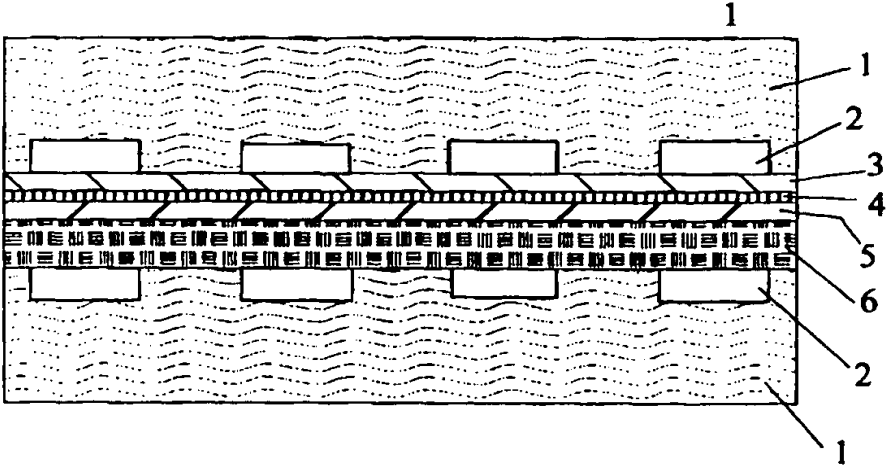


Figure 2



**PCT**  
WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales Büro  
INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

<p>(51) Internationale Patentklassifikation <sup>6</sup> : <b>H01M 8/12, 4/86, 8/06</b></p>	<b>A3</b>	<p>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: <b>WO 97/23007</b></p> <p>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 26. Juni 1997 (26.06.97)</p>		
<table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"><tr><td style="width: 50%; vertical-align: top;"><p>(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE96/02424</p><p>(22) Internationales Anmeldedatum: 13. December 1996 (13.12.96)</p><p>(30) Prioritätsdaten: 195 47 700.6      20. December 1995 (20.12.95)      DE</p><p>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH [DE/DE]; Wilhelm-Johnen-Strasse, D-52425 Jülich (DE).</p><p>(72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): NAOUMIDIS, Aristides [GR/DE]; Kreisbahnstrasse 30, D-52428 Jülich (DE). TI- ETZ, Frank [DE/DE]; Dr.-Weyer-Strasse 18, D-52428 Jülich (DE). STÖVER, Detlev [DE/DE]; Taubenforst 9, D-52382 Niederzier (DE).</p><p>(74) Gemeinsamer Vertreter: FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH; Rechts- und Patentabteilung, D-52425 Jülich (DE).</p></td><td style="width: 50%; vertical-align: top;"><p>(81) Bestimmungsstaaten: AU, CA, JP, KR, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).</p><p><b>Veröffentlicht</b> <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i> <i>Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche</i> <i>zugelassenen Frist. Veröffentlichung wird wiederholt falls</i> <i>Änderungen eintreffen.</i></p><p>(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchen- berichts: 31. Juli 1997 (31.07.97)</p></td></tr></table>			<p>(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE96/02424</p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: 13. December 1996 (13.12.96)</p> <p>(30) Prioritätsdaten: 195 47 700.6      20. December 1995 (20.12.95)      DE</p> <p>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH [DE/DE]; Wilhelm-Johnen-Strasse, D-52425 Jülich (DE).</p> <p>(72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): NAOUMIDIS, Aristides [GR/DE]; Kreisbahnstrasse 30, D-52428 Jülich (DE). TI- ETZ, Frank [DE/DE]; Dr.-Weyer-Strasse 18, D-52428 Jülich (DE). STÖVER, Detlev [DE/DE]; Taubenforst 9, D-52382 Niederzier (DE).</p> <p>(74) Gemeinsamer Vertreter: FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH; Rechts- und Patentabteilung, D-52425 Jülich (DE).</p>	<p>(81) Bestimmungsstaaten: AU, CA, JP, KR, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).</p> <p><b>Veröffentlicht</b> <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i> <i>Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche</i> <i>zugelassenen Frist. Veröffentlichung wird wiederholt falls</i> <i>Änderungen eintreffen.</i></p> <p>(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchen- berichts: 31. Juli 1997 (31.07.97)</p>
<p>(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE96/02424</p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: 13. December 1996 (13.12.96)</p> <p>(30) Prioritätsdaten: 195 47 700.6      20. December 1995 (20.12.95)      DE</p> <p>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH [DE/DE]; Wilhelm-Johnen-Strasse, D-52425 Jülich (DE).</p> <p>(72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): NAOUMIDIS, Aristides [GR/DE]; Kreisbahnstrasse 30, D-52428 Jülich (DE). TI- ETZ, Frank [DE/DE]; Dr.-Weyer-Strasse 18, D-52428 Jülich (DE). STÖVER, Detlev [DE/DE]; Taubenforst 9, D-52382 Niederzier (DE).</p> <p>(74) Gemeinsamer Vertreter: FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH; Rechts- und Patentabteilung, D-52425 Jülich (DE).</p>	<p>(81) Bestimmungsstaaten: AU, CA, JP, KR, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).</p> <p><b>Veröffentlicht</b> <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i> <i>Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche</i> <i>zugelassenen Frist. Veröffentlichung wird wiederholt falls</i> <i>Änderungen eintreffen.</i></p> <p>(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchen- berichts: 31. Juli 1997 (31.07.97)</p>			
<p>(54) Title: ELECTRODE SUBSTRATE FOR FUEL CELL</p> <p>(54) Bezeichnung: ELEKTRODENSUBSTRAT FÜR BRENNSTOFFZELLE</p> <div style="text-align: center; margin: 20px 0;"></div>				
<p>(57) Abstract</p> <p>The invention relates to an electrode for a fuel cell with two layers (5, 6). The one layer (6) of said electrode is self-supporting and the other layer (5) has catalytic properties and of the self-supporting layer (6) is several times thicker than the other layer (5) with catalytic properties. The self-supporting layer can be manufactured from economical materials such as Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Consequently, the financial savings compared with known electrodes for fuel cells can be considerable.</p>				

**(57) Zusammenfassung**

Die Erfindung bezieht sich auf eine Elektrode für eine Brennstoffzelle mit zwei Schichten (5, 6), bei der die eine Schicht (6) selbsttragend ist und die andere Schicht (5) katalytische Eigenschaften aufweist und bei der die Schichtdicke der selbsttragenden Schicht (6) mehrfach dicker als die andere Schicht mit den katalytischen Eigenschaften (5) ist. Die selbsttragende Schicht kann aus preiswerten Materialien wie  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  hergestellt werden. Daher lassen sich erfindungsgemäß erhebliche Kosten im Vergleich zu bekannten Elektroden für Brennstoffzellen einsparen.

**LEDIGLICH ZUR INFORMATION**

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AM	Armenien	GB	Vereinigtes Königreich	MX	Mexiko
AT	Österreich	GE	Georgien	NE	Niger
AU	Australien	GN	Guinea	NL	Niederlande
BB	Barbados	GR	Griechenland	NO	Norwegen
BE	Belgien	HU	Ungarn	NZ	Neuseeland
BF	Burkina Faso	IE	Irland	PL	Polen
BG	Bulgarien	IT	Italien	PT	Portugal
BJ	Benin	JP	Japan	RO	Rumänien
BR	Brasilien	KE	Kenya	RU	Russische Föderation
BY	Belarus	KG	Kirgisistan	SD	Sudan
CA	Kanada	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	SE	Schweden
CF	Zentrale Afrikanische Republik	KR	Republik Korea	SG	Singapur
CG	Kongo	KZ	Kasachstan	SI	Slowenien
CH	Schweiz	LI	Liechtenstein	SK	Slowakei
CI	Côte d'Ivoire	LK	Sri Lanka	SN	Senegal
CM	Kamerun	LR	Liberia	SZ	Swasiland
CN	China	LK	Litauen	TD	Tschad
CS	Tschechoslowakei	LU	Luxemburg	TG	Togo
CZ	Tschechische Republik	LV	Lettland	TJ	Tadschikistan
DE	Deutschland	MC	Monaco	TT	Trinidad und Tobago
DK	Dänemark	MD	Republik Moldau	UA	Ukraine
EE	Estland	MG	Madagaskar	UG	Uganda
ES	Spanien	ML	Mali	US	Vereinigte Staaten von Amerika
FI	Finnland	MN	Mongolei	UZ	Usbekistan
FR	Frankreich	MR	Mauretanien	VN	Vietnam
GA	Gabon	MW	Malawi		

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inter- national Application No  
PCT/DE 96/02424

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
IPC 6 H01M8/12 H01M4/86 H01M8/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
IPC 6 H01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DE 41 32 584 A (FUJII ELECTRIC CO LTD) 9 April 1992 see column 3, line 38 - line 66; claim 1; figure 1 see column 4, line 65 - column 5, line 2	1,2,5,6
Y	---	3,4
Y	EP 0 572 017 A (MURATA MANUFACTURING CO) 1 December 1993 see claim 1 ---	3,4
	-/--	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents :

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- \*&\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

28 May 1997

Date of mailing of the international search report

06.06.97

Name and mailing address of the ISA  
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax (+ 31-70) 340-3016

Authorized officer

D'hondt, J

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/DE 96/02424

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 116, no. 18, 4 May 1992 Columbus, Ohio, US; abstract no. 177638d, SUZUKI, M ET AL: "Development of ruthenium/zirconia SOFC anode" XP000389292 see abstract & COMM. EUR. COMMUNITIES, REP EUR 1991, EUR 13564, page 585-91	3,4
Y	--- US 4 275 126 A (BERGMANN ERICH ET AL) 23 June 1981 see claim 7; example 1	3,4
X	--- EP 0 414 270 A (MEIDENSHA ELECTRIC MFG CO LTD) 27 February 1991 see claims 1,3; figures 2,7,26,27 see example 1	1,2,6
X	--- CH 515 622 A (COMPAGNIE FRANCAISE DE RAFFINAGE) 15 November 1971 see claims 1,1,4,5; figures 7,8 see column 2, line 8 - line 18 see column 3, line 51 - line 59 see column 4, line 26 - line 35 see column 6, line 8 - line 14	1,2
X	--- DE 14 96 223 A (SHELL INTERNATIONALE RESEARCH MAATSCHAPPIJ) 4 June 1969 see page 2, last paragraph - page 4, paragraph 2; claims 1,2; figure 1 see page 6; table 1	1,2,6
X	--- EP 0 510 820 A (NGK INSULATORS LTD) 28 October 1992 see page 3, line 56 - page 4, line 13; figure 2	1,2
A	--- EP 0 285 727 A (WESTINGHOUSE ELECTRIC CORP) 12 October 1988 see claim 1; figure 5	5
A	--- WO 93 26055 A (BRITISH NUCLEAR FUELS PLC ;LEWIN ROBERT GLYN (GB); WOOD GEOFFREY O) 23 December 1993 see claims 1,8; figure 1 -----	5



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

information on patent family members

International Application No  
PCT/DE 96/02424

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 4132584 A	09-04-92	JP 5003037 A US 5122425 A	08-01-93 16-06-92
EP 0572017 A	01-12-93	JP 5326009 A US 5368951 A	10-12-93 29-11-94
US 4275126 A	23-06-81	CH 631834 A CH 630493 A CA 1134902 A DE 2915705 A FR 2423065 A GB 2018833 A,B JP 1344889 C JP 54137642 A JP 61008149 B NL 7902846 A AU 521831 B AU 4600379 A BE 875499 A	31-08-82 15-06-82 02-11-82 25-10-79 09-11-79 24-10-79 29-10-86 25-10-79 12-03-86 16-10-79 29-04-82 18-10-79 11-10-79
EP 0414270 A	27-02-91	JP 3081962 A JP 3081965 A DE 69016881 D DE 69016881 T KR 9501256 B US 5151334 A	08-04-91 08-04-91 23-03-95 08-06-95 15-02-95 29-09-92
CH 515622 A	15-11-71	NONE	
DE 1496223 A	04-06-69	BE 651809 A FR 1404259 A GB 1049428 A NL 6409436 A SE 302794 B	15-02-65 05-11-65  16-02-65 05-08-68
EP 0510820 A	28-10-92	JP 4301369 A JP 7048378 B CA 2064263 A,C DE 69207637 D DE 69207637 T	23-10-92 24-05-95 29-09-92 29-02-96 19-09-96

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE 96/02424

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0510820 A		US 5308712 A	03-05-94
EP 0285727 A	12-10-88	CA 1302486 A	02-06-92
		DE 3776895 A	02-04-92
		JP 63261678 A	28-10-88
		US 4888254 A	19-12-89
WO 9326055 A	23-12-93	AU 662990 B	21-09-95
		AU 4342193 A	04-01-94
		CA 2115068 A	23-12-93
		DE 69306371 D	16-01-97
		DE 69306371 T	30-04-97
		EP 0606424 A	20-07-94
		ES 2094547 T	16-01-97
		JP 6510630 T	24-11-94
		NO 940380 A	05-04-94
		US 5508127 A	16-04-96

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen  
PC1/DE 96/02424

**A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES**  
IPK 6 H01M8/12 H01M4/86 H01M8/06

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

**B. RECHERCHIERTE GEBIETE**

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
IPK 6 H01M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

**C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN**

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	DE 41 32 584 A (FUJI ELECTRIC CO LTD) 9. April 1992 siehe Spalte 3, Zeile 38 - Zeile 66; Anspruch 1; Abbildung 1 siehe Spalte 4, Zeile 65 - Spalte 5, Zeile 2	1,2,5,6
Y	---	3,4
Y	EP 0 572 017 A (MURATA MANUFACTURING CO) 1. Dezember 1993 siehe Anspruch 1  ---	3,4
	-/--	

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

- \* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
- \*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
  - \*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
  - \*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
  - \*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
  - \*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

- \*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
- \*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden
- \*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
- \*Z\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

28. Mai 1997

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

06.06.97

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+ 31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

D'hondt, J

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen  
PCT/DE 96/02424

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 116, no. 18, 4.Mai 1992 Columbus, Ohio, US; abstract no. 177638d, SUZUKI, M ET AL: "Development of ruthenium/zirconia SOFC anode" XP000389292 siehe Zusammenfassung & COMM. EUR. COMMUNITIES, REP EUR 1991, EUR 13564, Seite 585-91	3,4
Y	--- US 4 275 126 A (BERGMANN ERICH ET AL) 23.Juni 1981 siehe Anspruch 7; Beispiel 1	3,4
X	--- EP 0 414 270 A (MEIDENSHA ELECTRIC MFG CO LTD) 27.Februar 1991 siehe Ansprüche 1,3; Abbildungen 2,7,26,27 siehe Beispiel 1	1,2,6
X	--- CH 515 622 A (COMPAGNIE FRANCAISE DE RAFFINAGE) 15.November 1971 siehe Ansprüche 1,1,4,5; Abbildungen 7,8 siehe Spalte 2, Zeile 8 - Zeile 18 siehe Spalte 3, Zeile 51 - Zeile 59 siehe Spalte 4, Zeile 26 - Zeile 35 siehe Spalte 6, Zeile 8 - Zeile 14	1,2
X	--- DE 14 96 223 A (SHELL INTERNATIONALE RESEARCH MAATSCHAPPIJ) 4.Juni 1969 siehe Seite 2, letzter Absatz - Seite 4, Absatz 2; Ansprüche 1,2; Abbildung 1 siehe Seite 6; Tabelle 1	1,2,6
X	--- EP 0 510 820 A (NGK INSULATORS LTD) 28.Oktober 1992 siehe Seite 3, Zeile 56 - Seite 4, Zeile 13; Abbildung 2	1,2
A	--- EP 0 285 727 A (WESTINGHOUSE ELECTRIC CORP) 12.Oktober 1988 siehe Anspruch 1; Abbildung 5	5
A	--- WO 93 26055 A (BRITISH NUCLEAR FUELS PLC ; LEWIN ROBERT GLYN (GB); WOOD GEOFFREY O) 23.Dezember 1993 siehe Ansprüche 1,8; Abbildung 1 -----	5

Formblatt PCT/ISA/210 (Fortsetzung von Blatt 2) (Juli 1992)

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 96/02424

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
DE 4132584 A	09-04-92	JP 5003037 A US 5122425 A	08-01-93 16-06-92
EP 0572017 A	01-12-93	JP 5326009 A US 5368951 A	10-12-93 29-11-94
US 4275126 A	23-06-81	CH 631834 A CH 630493 A CA 1134902 A DE 2915705 A FR 2423065 A GB 2018833 A,B JP 1344889 C JP 54137642 A JP 61008149 B NL 7902846 A AU 521831 B AU 4600379 A BE 875499 A	31-08-82 15-06-82 02-11-82 25-10-79 09-11-79 24-10-79 29-10-86 25-10-79 12-03-86 16-10-79 29-04-82 18-10-79 11-10-79
EP 0414270 A	27-02-91	JP 3081962 A JP 3081965 A DE 69016881 D DE 69016881 T KR 9501256 B US 5151334 A	08-04-91 08-04-91 23-03-95 08-06-95 15-02-95 29-09-92
CH 515622 A	15-11-71	KEINE	
DE 1496223 A	04-06-69	BE 651809 A FR 1404259 A GB 1049428 A NL 6409436 A SE 302794 B	15-02-65 05-11-65  16-02-65 05-08-68
EP 0510820 A	28-10-92	JP 4301369 A JP 7048378 B CA 2064263 A,C DE 69207637 D DE 69207637 T	23-10-92 24-05-95 29-09-92 29-02-96 19-09-96

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 96/02424

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0510820 A		US 5308712 A	03-05-94
EP 0285727 A	12-10-88	CA 1302486 A	02-06-92
		DE 3776895 A	02-04-92
		JP 63261678 A	28-10-88
		US 4888254 A	19-12-89
WO 9326055 A	23-12-93	AU 662990 B	21-09-95
		AU 4342193 A	04-01-94
		CA 2115068 A	23-12-93
		DE 69306371 D	16-01-97
		DE 69306371 T	30-04-97
		EP 0606424 A	20-07-94
		ES 2094547 T	16-01-97
		JP 6510630 T	24-11-94
		NO 940380 A	05-04-94
		US 5508127 A	16-04-96